

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-329959

(43)Date of publication of application : 13.12.1996

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 07-139343

(71)Applicant : TOSHIBA CORP

(22)Date of filing : 06.06.1995

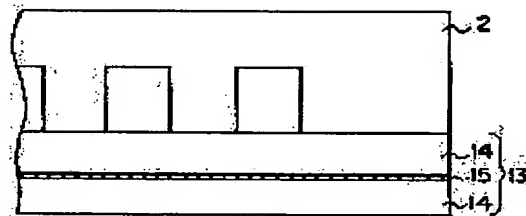
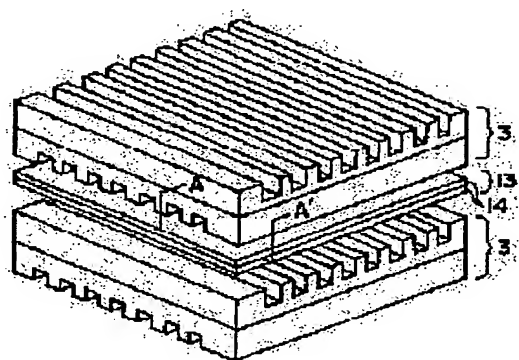
(72)Inventor : IYASU KYOTARO  
KOJIMA SUSUMU

## (54) FUEL CELL

## (57)Abstract:

PURPOSE: To provide a fuel cell capable of easily separating a separator from a cell even if they are stuck by a long period of operation and easily replacing a defective cell by specifically constituting the separator in a stack in the fuel cell having the specified fuel cell stack.

CONSTITUTION: A unit cell 3 is constituted in such a way that flowing grooves of fluid fuel and a liquid oxidizing agent are formed on each side of a matrix in which an electrolyte is impregnated, a pair of rib electrodes 2 are arranged, and the fluid fuel and the liquid oxidizing agent are let to flow through the flowing grooves a plurality of times in the flat surface direction to output electric energy, and a plurality of unit cells 3 are stacked through a separator 13, and if necessary a cooling plate is arranged, then they are integrally fastened to form a fuel cell stack to constitute a fuel cell. In the fuel cell, the separator 13 is constituted with a plurality of carbon material sheets 14, and the carbon material sheets 14 are sealed each other preferably with a non-adhesive sealing material 15 so as to be capable of separating.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 09.05.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 26.11.2002

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] It comes to arrange the rib electrode of a couple with which the matrix which sank in the electrolyte was inserted and the negotiation slot of a fluid fuel and a fluid oxidizing agent was formed. The unit cell by which a fluid fuel and a fluid oxidizer output electrical energy to said negotiation slot in the direction of a flat surface under the conditions which are carrying out the multiple-times negotiation. The fuel cell characterized by having carried out the laminating of the more than one through the separator, having constituted said separator from carbon material of two or more sheets, and enabling separation of between [ concerned / each ] carbon material of the fuel cell layered product which has arranged the cooling plate further suitably and was bound tight to one in the fuel cell constituted by having.

[Claim 2] The fuel cell characterized by carrying out the seal of between [ which constitutes said separator / of two or more sheets ] carbon material by the non-adhesive property sealant in said fuel cell according to claim 1.

[Claim 3] It is the fuel cell characterized by using the sealant of a fluororesin system as said non-adhesive property sealant in said fuel cell according to claim 2.

[Claim 4] It is the fuel cell characterized by for said separator carrying out the 2-3-sheet laminating of the carbon material with a thickness of 0.3-0.5mm in said fuel cell according to claim 1, and changing.

[Claim 5] In said fuel cell according to claim 1, said separator carries out the laminating of the carbon material of three sheets, it constitutes, and the carbon material of the upper and lower sides concerned is mostly divided into parallel at the reaction section and the edge with the negotiation slot of the electrode with a rib which counters, and it is the fuel cell which carries out and is characterized by change thermal melting arrival with a fluororesin film about the edge concerned.

[Claim 6] It is the fuel cell characterized by for said separator being flexibility between [ of two or more sheets ] carbon material, and pinching the sheet-like ingredient of electrical conductivity in said fuel cell according to claim 1, and changing.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] It comes to arrange the rib electrode of a couple with which this invention sandwiched the matrix which sank in the electrolyte, and the negotiation slot of a fluid fuel and a fluid oxidizing agent was formed. The unit cell by which a fluid fuel and a fluid oxidizer output electrical energy to a negotiation slot in the direction of a flat surface under the conditions which are carrying out the multiple-times negotiation It is related with the fuel cell which carries out the laminating of (only calling a cel hereafter) through a separator, and is built over the fuel cell constituted by having the fuel cell layered product which has arranged the cooling plate further suitably and was bound tight to one, especially enabled it to exchange the defect cel of the body of a fuel cell easily. [ two or more ]

[0002]

[Description of the Prior Art] A fuel cell is known as equipment which transforms into electric energy directly the chemical energy which the fuel has from the former. This fuel cell makes one electrode tooth back carry out multiple-times contact of the fluid fuels, such as hydrogen, horizontally, and makes the electrode tooth back of another side carry out multiple-times contact of the fluid oxidizers, such as oxygen, horizontally, and it is constituted using the electrochemical reaction which occurs at this time so that electrical energy may be taken out from each above-mentioned inter-electrode one, while usually arranging the porous electrode of a couple on both sides of the matrix which sank in the electrolyte. And this kind of fuel cell can take out electrical energy with high conversion efficiency, as long as the fluid fuel and the fluid oxidizer are supplied.

[0003] Now, the cel of the fuel cell which used especially the phosphoric acid as the electrolyte based on the above principles is constituted as that longitudinal-section perspective view is shown in drawing 8 (a), and it constitutes the fuel cell layered product by carrying out the laminating of two or more these cels.

[0004] That is, in drawing 8 (a), the electrode 2 with a rib of a couple with which it is formed by the porous body which usually becomes both sides from carbon material on both sides of the matrix 1 which sank in the phosphoric acid which is an electrolyte, and the catalyst is added is arranged, and the cel 3 is constituted.

[0005] Moreover, the electrode 2 with a rib of the couple of this cel 3 has the negotiation slot of a fluid fuel and a fluid oxidizer in the opposite hand of a catalyst addition side (the 1st page of matrix), respectively, and the fluid fuel and the fluid oxidizer are carrying out the multiple-times negotiation in the direction of a flat surface (level).

[0006] And the laminating of two or more these cels 3 is carried out by turns through a separator 4, a cooling plate 5 is arranged further suitably, it binds tight to one, and the fuel cell layered product is constituted. In addition, two or more cels 3 pinched between cooling plate 5 are called the block here.

[0007] Next, the negotiation of a fluid fuel and a fluid oxidizer is explained. The fluid fuel and the fluid oxidizer have structure which carries out a multiple-times negotiation in the direction of a flat surface, as shown in drawing 8 (b).

[0008] That is, the electrode 2 with a rib has the partition section 6, carries out the return of the fluid fuel through fluid fuel entrance-side 7a, and passes fluid fuel return side 7b. Moreover, similarly, the return also of the fluid oxidizer is carried out through fluid oxidizer entrance-side 8a, and it passes fluid oxidizer return side 8b.

[0009] By the way, if long duration operation of such a fuel cell is carried out, variation arises on the electrical potential difference between cel 3, cel 3 property may fall or it may become the defect cel which is expanded gradually and produces the cross leak by lack of an electrolyte etc. And it is necessary to exchange for the new cel 3 in this case.

[0010] However, if the carbon ingredient of a cel 3, a separator 4, and cooling plate 5 grade tends to stop pasting up and separating and it is going to remove forcibly when long duration operation of the fuel cell is carried out, it may be made to damage to the normal cel 3.

[0011] For example, when cross leak occurs in the cel 3 located in the medium among two or more cels 3 pinched between cooling plate 5, it is difficult to sample only the cel 3. Then, he takes out a target block first and is trying to usually remove one sheet at a time in an order from the upper cel 3.

[0012] However, since the carbon ingredient of many cels 3, a separator 4, and cooling plate 5 grade stops pasting up and separating, it is made to damage to the normal cel 3 unavoidably.

[0013]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] As mentioned above, in the conventional fuel cell, when exchanging for a new cel by operation of long duration, and carbon ingredients, such as a cel, a separator, and a cooling plate, tend to stop having pasted up and separated and it was going to remove forcibly, there was a problem of making it damage to a normal cel.

[0014] The object of this invention is to offer the fuel cell which the target defect cel is taken out easily and can exchange them, without being able to dissociate easily and damaging a normal cel, even if it pastes up between a cel and a separator by prolonged operation.

[0015]

[Means for Solving the Problem] In order to attain the above-mentioned object, the matrix which sank in the electrolyte is inserted in this invention. It comes to arrange the rib electrode of a couple with which the negotiation slot of a fluid fuel and a fluid oxidizing agent was formed. The unit cell by which a fluid fuel and a fluid oxidizer output electrical energy to a negotiation slot in the direction of a flat surface under the conditions which are carrying out the multiple-times negotiation. The laminating of the more than one is carried out through a separator, in the fuel cell constituted by having, a separator is constituted from carbon material of two or more sheets, and separation of between [concerned / each] carbon material of the fuel cell layered product which has arranged the cooling plate further suitably and was bound tight to one is enabled.

[0016] It is desirable to carry out the seal of between [which constitutes especially the above-mentioned separator / of two or more sheets] carbon material by the non-adhesive property sealant here. Moreover, as the above-mentioned non-adhesive property sealant, it is more desirable to use the sealant of a fluororesin system.

[0017] On the other hand, as for the above-mentioned separator, it is desirable to carry out the 2-3-sheet laminating of the carbon material with a thickness of 0.3-0.5mm, and to change. Moreover, as for the above-mentioned separator, it is desirable to carry out the laminating of the carbon material of three sheets, to constitute it, and to divide mostly the carbon material of the upper and lower sides concerned into parallel at the reaction section and the edge with the negotiation slot of the electrode with a rib which counters, and to carry out the edge concerned thermal melting arrival with a fluororesin film, and to change. Furthermore, as for the above-mentioned separator, it is desirable to be flexibility, and to pinch the sheet-like ingredient of electrical conductivity between [of two or more sheets] carbon material, and to grow into it.

[0018]

[Function] Therefore, the defect cel made into the object can be exchanged easily, without damaging the normal cel of the fuel cell operated for a long time, if it dissociates between carbon material even if the separator which consists of a cel and carbon material pastes up since it is possible to separate between [each] carbon material easily by the separator consisting of

carbon material of two or more sheets in the fuel cell of this invention.

[0019] Moreover, since it is disengageable per cel, when carrying out a re-laminating next, the laminating of the separator can be carried out easily. Moreover, since a cel and a separator are in the small condition of the contact resistance which got used well, the property stabilized even if re-generated electricity can be acquired.

[0020] Furthermore, by a separator's carrying out the laminating of the carbon material of two or more sheets, and constituting it Since the breakthrough which penetrates the carbon material of the 1st sheet between long duration activities, or a cracking crack should occur, and gas is carrying out two or more sheet laminating even if transparency or an electrolyte (phosphoric acid) permeates, It can prevent by the carbon material after the 2nd sheet, and can prevent resulting in the crossover of a fluid fuel and a fluid oxidizing agent.

[0021] By the above, it not only makes easy exchange of the defect cel of a fuel cell which carried out long duration operation, but a reliable fuel cell with little transparency of gas and osmosis of a phosphoric acid will be obtained.

[0022]

[Example] First, the view of this invention is explained. In the fuel cell mentioned above, as a result of these people investigating wholeheartedly about adhesion of carbon ingredients, such as a cel, a separator, and a cooling plate, it turned out that the location by the side of the return of that the rate of the cel to paste up increase with buildup of the operation time of a fuel cell and that it be easy to paste up the cel near the cooling plate, the fluid fuel with still higher vapor pressure also in a cel, and a fluid oxidizer have paste up comparatively mostly.

[0023] On the other hand, as a result of considering the cause of adhesion, it turned out that it pastes up for the three following reasons.

(a) Drawing 9 is the enlarged drawing showing the adhesion condition between the carbon fiber of a separator and a cel. As shown in a in drawing 9, when the height 9 of micro cross-section 4' of a separator 4 and the head of carbon fiber 10 are forced by bolting, stress concentrates at a head. Furthermore, viscoelasticity adhesion is caused by the elevated temperature and prolonged bolting.

[0024] (b) If the phosphoric acid 11 which the phosphoric-acid steam condensed goes into the clearance between the carbon fiber 10 of a separator 4 and a cel 3 as shown in b in drawing 9, by capillarity, a clearance will serve as negative pressure and it will paste up.

[0025] (c) As shown in c in drawing 9, when the adhesive matter 12 exists between the carbon fiber 10 of a separator 4 and a cel 3, paste up. This adhesive matter 12 is SiO<sub>2</sub> which exists in the SiC front face currently used for a matrix. It is phosphoric-acid silicon which is one of the resultants of a phosphoric acid. By operation of long duration, liquid phosphoric-acid silicon is condensed by contacting gas on carbon fiber 10 front face, serves as a viscous liquid, and pastes up a solid-state front face.

[0026] It compounds and these causes are considered [ independent or ] to have pasted up the carbon ingredient of a cel 3, a separator 4, and cooling plate 5 grade. So, a separator is constituted from carbon material of two or more sheets, and between [ each ] carbon material consists of this inventions disengageable easily further.

[0027] Here, as for the separator which consists of carbon material of two or more sheets, it is desirable to constitute carbon material with a thickness of 0.3-0.5mm by carrying out a 2-3-sheet laminating. Moreover, in order to prevent the gas leak between each carbon material and to make separation between carbon material easy, as for the separator which consists of carbon material of two or more sheets, it is desirable to arrange a non-adhesive property sealant.

[0028] Furthermore, generally as carbon material, it is gas permeability 10-4 cc/min.cm<sup>2</sup> the consistency of 1.4g/cc or more, below 5m ohm-cm of electrical resistivity, and more than [ thermal conductivity 4W / (m-k) above ]. It is desirable to use the thing which has curvature few as much as possible and which has gas impermeability, such as the following, right conductivity, and right thermal conductivity collectively.

[0029] Next, fitness carbon material laminating number of sheets was examined in the detail.

Drawing 10 is property drawing showing the relation between the carbon timber volume layer number of sheets of a separator when setting thickness of the whole separator to 1mm, and the

amount of gas transparency.

[0030] That is, the amount of gas transparency decreases greatly by making the laminating number of sheets of carbon material into two sheets (0.5mmx2) from one sheet (1mmx1). Furthermore, when the laminating number of sheets of carbon material was made into three sheets (0.33mmx3), the amount of gas transparency decreased, and when the laminating number of sheets of carbon material was further made into four sheets (0.25mmx4), change was seldom seen.

[0031] Although it is so clear that there is much laminating number of sheets of carbon material that the amount of gas transparency decreases, in order to make [ many ] laminating number of sheets, the carbon material of thin uniform thickness is required, and it is difficult to be cheap and to manufacture them with sufficient dimensional accuracy. Moreover, contact resistance increases and electrical conductivity important for a cell property falls, so that the laminating number of sheets of carbon material increases. Furthermore, it is also possible to carry out several multi-sheet laminating of the thick carbon material with a thickness of 0.5mm or more, and although the amount of gas transparency decreases greatly, since height becomes high and weight also increases, it is not a best policy in a actual fuel cell.

[0032] As mentioned above, it turned out that the case where the 2-3-sheet laminating of the carbon material with a thickness of 0.3-0.5mm is carried out can have little the laminating height and weight increase of a fuel cell, and can prevent gas transparency efficiently, and lowering of electrical conductivity can be pressed down.

[0033] It is desirable to use the sealant of a fluororesin system on the other hand, as a non-adhesive property sealant for preventing the gas leak between carbon material of two or more sheets, in order to make separation between carbon material easy.

[0034] It can attain by arranging the sealing tape made of PTFE resin, and a porosity PTFE resin sheet, or more specifically applying the grease made of PTFE resin. Moreover, although a fluorine rubber sheet is also usable, between carbon material may be adhered depending on conditions, such as temperature.

[0035] As mentioned above, since it is a non-adhesive property sealant by using the sealant of a fluororesin system, separation between carbon material can be made easy. Furthermore, electrolytic (phosphoric acid) osmosis can also be prevented by the improvement in the gas-seal function between carbon material, and water repellence.

[0036] Hereafter, the example of this invention based on the above views is explained to a detail with reference to a drawing.

(The 1st example) Drawing 1 is the decomposition perspective view showing the example of an important section configuration of the fuel cell which has a separator by this example.

[0037] In drawing 1, between each cel 3, in order to separate gas, the separator 13 of this example is arranged. Moreover, this separator 13 carries out the two-sheet laminating of the thickness of 0.5mm, the consistency of 1.7g/cc, 1.4m ohm-cm of electrical resistivity, thermal conductivity 7W/(m. k), gas permeability 10-5 cc/min.cm<sup>2</sup>, and the carbon material 14 of 7% of porosity, and constitutes them.

[0038] Furthermore, between [ each ] carbon material 14, in order to make separation between carbon material 14 easy and to prevent the gas leak further between carbon material 14, as the A-A' fragmentary sectional view of drawing 1 is shown in drawing 2, the sealing tape made of for example, PTFE resin (0.15mm in width of face of 20mm, thickness) is arranged as a non-adhesive property sealant 15.

[0039] Moreover, the non-adhesive property sealant 15 can be arranged to two sides which counter, or four sides of perimeters, as a top view is shown in drawing 3 (a) and (b). That is, it is more desirable to arrange to four sides of perimeters, if this non-adhesive property sealant 15 takes safety into consideration although it achieves at least two sides of that function when a seal is trustworthy.

[0040] Next, it compared with the fuel cell which carried out the laminating of the cel 3 using the separator 13 of this example, and carried out the laminating of the fuel cell using the conventional separator (thickness the physical properties of 1mm and other carbon material are the same as that of the separator of this example) 4 which operated for about 10000 hours and

was mentioned above by the predetermined service condition. The overhaul was performed after operation of a fuel cell and the rate of the cel separated normally was investigated.

[0041]

[A table 1]

表 1 正常に分離できた単位セルの割合

	正常に分離	破 損	備 考
本発明のセパレータ	100%	0%	容易に分離できる
従来のセパレータ	20%	80%	慎重さと分離に長時間要

[0042] As shown in a table 1, even if the cel 3 and the separator 13 pasted up in the fuel cell which used the separator 13 of this example, for example, it was the separator 13 which consists of carbon material 14 of two or more sheets, and the result was able to separate each cel 3 between carbon material 14 further, without could dissociate easily and damaging 100%, since the non-adhesive property sealant 15 is arranged.

[0043] On the other hand, in the fuel cell which used the conventional separator 4, although separation of a cel 3 was tried carefully, it was separable into normal 20% of the whole. And remaining 80% was an unusable cel although there was a difference of extent of breakage. When the adhesion condition of the cel 3 at this time and a separator 4 was observed in the detail, the cel 3 which the whole pasted up had comparatively many cels 3 in the condition of there being nothing, and there being a location locally pasted up on the active zone strongly, and having damaged slightly.

[0044] Thus, since it is easily separable between carbon material 14, the separator 13 of this example which comes to carry out the laminating of the carbon material 14 of two sheets can take out the target defect cel 3 easily, without damaging other normal cels 3.

[0045] Moreover, since gas transparency and phosphoric-acid osmosis can be prevented by the carbon material 14 of two sheets and there is no crossover, the property stabilized for a long period of time is maintainable. As mentioned above, the separator 13 of the fuel cell by this example becomes possible [ taking out the poor target cel 3 easily and exchanging them ], without being able to dissociate easily between carbon material 14 and damaging the normal cel 3, even if between a cel 3 and a separator 13 pastes up by prolonged operation since the laminating of the carbon material 14 of two sheets is carried out and it is constituted.

[0046] Moreover, in cel 3 unit, since the separator 13 is disengageable, when carrying out a re-laminating next, it becomes possible [ carrying out a laminating simply ]. Moreover, since a cel 3 and a separator 13 are in the small condition of the contact resistance which got used well, it becomes possible to acquire the property stabilized even if re-generated electricity.

[0047] Furthermore, since the laminating of the carbon material 14 of two sheets is carried out and the separator 13 is constituted, the breakthrough which penetrates the carbon material 14 of the 1st sheet between prolonged activities, or a cracking crack should occur, and it enables gas to prevent being able to prevent by the carbon material after the 2nd sheet, and resulting in the crossover of a fluid fuel and a fluid oxidizing agent, even if transparency or an electrolyte (phosphoric acid) permeates.

[0048] By the above, it not only makes easy exchange of the defect cel 3 of the fuel cell operated for a long time, but transparency of gas and osmosis of a phosphoric acid can obtain few reliable fuel cells.

[0049] (The 2nd example) This example enables it to separate only the carbon material 14 of an active zone easily paying attention to there being a location which adhesion with the cel 3 and separator 13 after about 10000-hour operation mentioned above pastes up on an active zone strongly locally.



[0050] Drawing 4 is the decomposition perspective view showing the example of an important section configuration of the fuel cell which has a separator by this example, and attaches and shows the same sign to the same element as drawing 1 thru/or drawing 3. In drawing 4, between each cel 3, in order to separate gas, the separator 13 of this example is arranged.

[0051] Moreover, this separator 13 carries out the three-sheet laminating of the thickness of 0.3mm, the consistency of 1.7g/cc, 1.4m ohm-cm of electrical resistivity, thermal conductivity 7W/(m. k), gas permeability 10-5 cc/min.cm2, and the carbon material 14 of 7% of porosity, and constitutes them.

[0052] Furthermore, as the A-A' fragmentary sectional view of drawing 4 is shown in drawing 5, the up-and-down carbon material 14 divides into parallel mostly with the slot of the ribbed electrode 2 which counters, respectively at reaction section carbon material 14a and edge carbon material 14b, and is welding edge carbon material 14b of the up-and-down carbon material 14 by thermal melting arrival with the central carbon material 14 and the central fluoro-resin film 16.

[0053] Here, thermal melting arrival is performed, for example, using a PFA resin film as a fluoro-resin film 16. Specifically a PFA resin film with a width of face [ of 20mm ] and a thickness of 0.5mm is placed between edge 14b of the central carbon material 14 and the up-and-down carbon material 14, and it heats to the temperature of Centigrade 310 - 380 degrees, and is press pressure 1 kg/cm2. It is the above pressure, and it applies for about 1 - 30 minutes, and thermal melting arrival is carried out.

[0054] In addition, a PTFE resin film, an FEP resin film, etc. can be used for thermal melting arrival other than a PFA resin film. Furthermore, reaction section carbon material 14a arranges the non-adhesive property sealant 15 with water repellence, in order to install among edge carbon material 14b by which thermal melting arrival was carried out, and to make separation easy between the central carbon material 14 and to prevent trespass of a phosphoric acid. The sealing tape made of PTFE resin (0.15mm in width of face of 20mm, thickness) is arranged, and since it is a non-adhesive property, specifically, removal can be done easily.

[0055] In the fuel cell which used the separator 13 of this example constituted as mentioned above, by long duration operation, even if a cel 3 and a separator 13 paste up, since there are comparatively many locations locally pasted up on an active zone strongly, although reaction section carbon material 14a of the up-and-down carbon material 14 pastes up with a ribbed electrode 2, the remaining edge carbon material 14b is hardly pasted up. Therefore, reaction section carbon material 14a of the pasted-up upper and lower sides and edge carbon material 14b by which thermal melting arrival was carried out with the carbon material 14 and the fluoro-resin film 16 of the remaining centers are easily separable.

[0056] Moreover, when using it for a degree, only up-and-down reaction section carbon material 14a can newly be prepared, and the reuse of the edge carbon material 14b by which thermal melting arrival was carried out with central remaining carbon material 14 and fluoro-resin films 16 can be carried out.

[0057] Furthermore, since thermal melting arrival of the edge carbon material 14b of the carbon material 14 of the upper and lower sides of this example is carried out with the PFA resin film, especially the seal nature between carbon material 14 is excellent. Next, it compared with the fuel cell which carried out the laminating of the cel 3 using the separator 13 of this example, and carried out the laminating of the fuel cell using the conventional separator (thickness the physical properties of 1mm and other carbon material are the same as that of the separator of this example) 4 which operated for about 10000 hours and was mentioned above by the predetermined service condition.

[0058] The overhaul was performed after operation of a fuel cell and the rate of the cel 3 separated normally was investigated. The result was able to be separated without damaging the normal cel 3 100% of the whole.

[0059] (The 3rd example) between [ of the separator with which this example consists of carbon material of two or more sheets ] carbon material -- flexibility -- and while making the sheet-like ingredient of electrical conductivity pinch and making separation between carbon material easy, it is made to raise the electrical conductivity of a separator

[0060] Drawing 6 is the decomposition perspective view showing the example of an important section configuration of the fuel cell which has a separator by this example, and attaches and shows the same sign to the same element as drawing 1 thru/or drawing 5. In drawing 6, between each cel 3, in order to separate gas, the separator 13 of this example is arranged.

[0061] Moreover, as the A-A' fragmentary sectional view of drawing 6 is shown in drawing 7, this separator 13 is the flexibility pinched between the up-and-down carbon material 14 and the carbon material 14, and consists of sheet-like ingredients 17 of electrical conductivity.

[0062] Here, as carbon material 14, the thickness of 0.3mm, the consistency of 1.7g/cc, 1.4m ohm-cm of electrical resistivity, thermal conductivity 7W/(m. k), gas permeability 10-5 cc/min.cm<sup>2</sup>, and the thing of 7% of porosity are used.

[0063] Moreover, it is flexibility, and while making separation between carbon material 14 easy with a non-adhesive property, for example, using an expanded graphite sheet, a heat-resistant conductivity film, etc. as a sheet-like ingredient 17 of electrical conductivity, the clearance between carbon material 14 is lost by flexibility, between carbon material 14 are stuck more, and electrical conductivity and thermal conductivity are raised.

[0064] Here, as a sheet-like ingredient 17, the expanded graphite sheet of the thickness of 0.38mm, the consistency of 1.0g/cc, 100m ohm-cm of electrical resistivity, and thermal conductivity 3W/(m. k) is used.

[0065] Next, the laminating of the cel 3 was carried out using the separator 13 of this example, it bound tight by the predetermined pressure, the fuel cell was operated by the predetermined service condition for about 10000 hours, and it compared with the fuel cell which carried out the laminating using the conventional separator (thickness the physical properties of 1mm and other carbon material are the same as that of the separator of this example) 4 mentioned above.

[0066] The overhaul was performed after operation of a fuel cell and the rate of the cel 3 separated normally was investigated. The result was able to be separated without damaging the normal cel 3 100% of the whole.

[0067] Moreover, comparison examination of electrical resistivity and the thermal conductivity was conducted by the existence of sheet-like ingredient 17 pinching between carbon material 14. Consequently, it became clear that electrical resistivity and thermal conductivity of the separator 13 of this example which pinched the sheet-like ingredient 17 improve about 10% as compared with the separator 4 without sheet-like ingredient 17 pinching. This is flexibility, and loses the clearance between carbon material 14 by making the sheet-like ingredient 17 of electrical conductivity pinch, and is considered to be the effectiveness by having stuck between carbon material 14 further.

[0068] In addition, this invention is not limited to each above-mentioned example, and even if as follows, it can be carried out similarly. In the 1st example of the above, although the separator 13 consists of carbon material of two sheets, even if constituted from carbon material of not only this but three sheets (0.33mm in thickness), it cannot be overemphasized that the same operation effectiveness as the above-mentioned case is acquired.

[0069]

[Effect of the Invention] As explained above, according to this invention, the matrix which sank in the electrolyte is inserted. It comes to arrange the rib electrode of a couple with which the negotiation slot of a fluid fuel and a fluid oxidizing agent was formed. The unit cell by which a fluid fuel and a fluid oxidizer output electrical energy to a negotiation slot in the direction of a flat surface under the conditions which are carrying out the multiple-times negotiation In the fuel cell constituted by having the fuel cell layered product which carried out the laminating of the more than one through the separator, has arranged the cooling plate further suitably, and was bound tight to one Since it constitutes from carbon material of two or more sheets and was made to enable separation of between [ concerned / each ] carbon material of a separator The fuel cell which the target defect cel is taken out easily and can exchange them can be offered without being able to dissociate easily and damaging a normal cel, even if it pastes up between a cel and a separator by prolonged operation.

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPJ are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The decomposition perspective view showing the 1st example of the fuel cell by this invention.

[Drawing 2] The sectional view showing the example of a configuration of the separator in the fuel cell of this 1st example.

[Drawing 3] The top view showing the example of arrangement of the non-adhesive property sealant between the carbon material of the separator in the fuel cell of this 1st example.

[Drawing 4] The decomposition perspective view showing the 2nd example of the fuel cell by this invention.

[Drawing 5] The sectional view showing the example of a configuration of the separator in the fuel cell of this 2nd example.

[Drawing 6] The decomposition perspective view showing the 3rd example of the fuel cell by this invention.

[Drawing 7] The sectional view showing the example of a configuration of the separator in the fuel cell of this 3rd example.

[Drawing 8] The decomposition perspective view showing the example of a configuration of the conventional fuel cell.

[Drawing 9] The enlarged drawing showing the adhesion condition between the cells of an electrode with a rib and separators in a fuel cell.

[Drawing 10] Property drawing showing the relation between the carbon timber volume layer number of sheets of a separator when setting thickness of the whole separator in a fuel cell to 1mm, and the amount of gas transparency.

[Description of Notations]

- 1 -- Matrix,
- 2 -- Electrode with a rib,
- 3 -- Cel,
- 3a -- Cel near the cooling plate,
- 3b -- Cel of a center section,
- 4 -- Separator,
- 5 -- Cooling plate,
- 6 -- Partition section,
- 7a -- Fluid fuel entrance side,
- 7b -- Fluid fuel return side,
- 8a -- Fluid oxidizer entrance side,
- 8b -- Fluid oxidizer return side,
- 13 -- Separator,
- 14 -- Carbon material,
- 14a -- Reaction section carbon material,
- 14b -- Edge carbon material,
- 15 -- Non-adhesive property sealant,
- 16 -- Fluororesin film,

17 -- Sheet-like ingredient.

---

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-329959

(43) 公開日 平成8年(1996)12月13日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

H 0 1 M 8/02

識別記号

庁内整理番号

F I

H 0 1 M 8/02

技術表示箇所

B

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平7-139343

(22) 出願日 平成7年(1995)6月6日

(71) 出願人 000003078

株式会社東芝

神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

(72) 発明者 居安 巨太郎

神奈川県川崎市川崎区浮島町2番1号 株式会社東芝浜川崎工場内

(72) 発明者 小嶋 晋

神奈川県川崎市川崎区浮島町2番1号 株式会社東芝浜川崎工場内

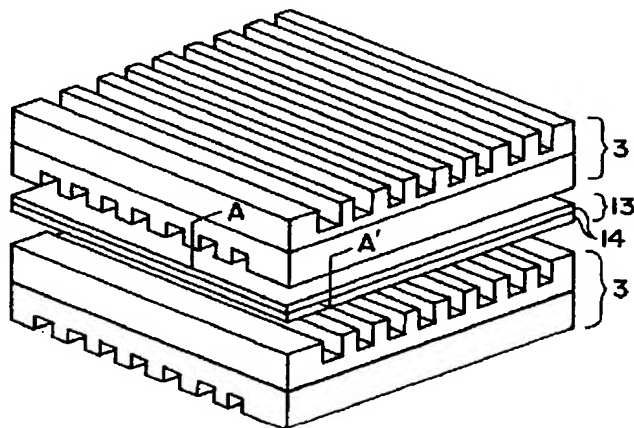
(74) 代理人 弁理士 鈴江 武彦

(54) 【発明の名称】 燃料電池

(57) 【要約】

【目的】 長期間の運転によりセルとセパレータ間で接着しても容易に分離することができ、正常なセルを破損することなく目的の不良セルを容易に取り出して交換すること。

【構成】 電解質を含浸したマトリックス1を挟んで、流体燃料と流体酸化剤の流通溝が形成された一対のリブ電極2を配置してなり、流通溝に流体燃料と流体酸化剤が平面方向に複数回流通している条件下で電気エネルギーを出力する単位セル3を、セパレータ4を介して複数個積層し、さらに適宜冷却板5を配置して一体に締付けた燃料電池積層体を備えて構成される燃料電池において、セパレータ4を、複数枚の炭素材で構成し、かつ当該各炭素材相互間を分離自在にする。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 電解質を含浸したマトリックスを挟んで、流体燃料と流体酸化剤の流通溝が形成された一対のリブ電極を配置してなり、前記流通溝に流体燃料と流体酸化剤が平面方向に複数回流通している条件下で電気エネルギーを出力する単位セルを、セパレータを介して複数個積層し、さらに適宜冷却板を配置して一体に締付けた燃料電池積層体を備えて構成される燃料電池において、前記セパレータを、複数枚の炭素材で構成し、かつ当該各炭素材相互間を分離自在にしたことを特徴とする燃料電池。

【請求項2】 前記請求項1に記載の燃料電池において、前記セパレータを構成する複数枚の炭素材相互間を、非接着性シール材でシールしたことを特徴とする燃料電池。

【請求項3】 前記請求項2に記載の燃料電池において、前記非接着性シール材としては、フッ素樹脂系のシール材を用いることを特徴とする燃料電池。

【請求項4】 前記請求項1に記載の燃料電池において、前記セパレータは、厚さ0.3～0.5mmの炭素材を2～3枚積層して成ることを特徴とする燃料電池。

【請求項5】 前記請求項1に記載の燃料電池において、前記セパレータは、3枚の炭素材を積層して構成し、当該上下の炭素材を対向するリブ付電極の流通溝とほぼ平行に反応部と端部とに分割し、かつ当該端部をフッ素樹脂フィルムで熱融着して成ることを特徴とする燃料電池。

【請求項6】 前記請求項1に記載の燃料電池において、前記セパレータは、複数枚の炭素材相互間に、可撓性でかつ電気伝導性のシート状材料を挟持して成ることを特徴とする燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、電解質を含浸したマトリックスを挟んで、流体燃料と流体酸化剤の流通溝が形成された一対のリブ電極を配置してなり、流通溝に流体燃料と流体酸化剤が平面方向に複数回流通している条件下で電気エネルギーを出力する単位セル（以下、単にセルと称する）を、セパレータを介して複数個積層し、さらに適宜冷却板を配置して一体に締付けた燃料電池積層体を備えて構成される燃料電池に係り、特に燃料電池本体の不良セルを容易に交換できるようにした燃料電池に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】従来から、燃料の有している化学的エネルギーを直接電氣的エネルギーに変換する装置として、燃料電池が知られてきている。この燃料電池は、通常、電解質を含浸したマトリックスを挟んで一対の多孔質電極を配置すると共に、一方の電極背面に水素等の流体燃

料を水平方向に複数回接触させ、また他方の電極背面に酸素等の流体酸化剤を水平方向に複数回接触させ、この時に起こる電気化学的反応を利用して、上記各電極間から電気エネルギーを取出すように構成されたものである。そして、この種の燃料電池は、流体燃料と流体酸化剤とが供給されている限り、高い変換効率で電気エネルギーを取出すことができるものである。

【0003】さて、上記のような原理に基づく、特にリン酸を電解質とした燃料電池のセルは、図8（a）にその縦断面斜視図を示すように構成されており、このセルを複数個積層することにより燃料電池積層体を構成している。

【0004】すなわち、図8（a）において、電解質であるリン酸を含浸したマトリックス1を挟んで両側に、通常炭素材からなる多孔質体で形成されて触媒が付加されている一対のリブ付電極2を配置して、セル3を構成している。

【0005】また、このセル3の一対のリブ付電極2は、触媒付加面（マトリックス1面）の反対側に、それぞれ流体燃料および流体酸化剤の流通溝を有しており、流体燃料および流体酸化剤が、平面（水平）方向に複数回流通している。

【0006】そして、このセル3を、セパレータ4を介して交互に複数個積層し、さらに適宜冷却板5を配置して一体に締付けて燃料電池積層体を構成している。なお、ここで、冷却板5相互間に挟持された複数個のセル3をブロックと称している。

【0007】次に、流体燃料および流体酸化剤の流通について説明する。流体燃料および流体酸化剤は、図8（b）に示すように、平面方向に複数回流通する構造となっている。

【0008】すなわち、リブ付電極2は仕切り部6を有し、流体燃料は流体燃料入口側7aを通過してリターンし、流体燃料リターン側7bを通過する。また、流体酸化剤も同様に、流体酸化剤入口側8aを通過してリターンし、流体酸化剤リターン側8bを通過する。

【0009】ところで、このような燃料電池を長時間運転していると、セル3相互間の電圧にバラツキが生じ、それが徐々に拡大されてセル3特性が低下したり、あるいは電解質の不足等によるクロスリークを生じる不良セルになる可能性がある。そして、この場合には、新しいセル3と交換する必要がある。

【0010】しかしながら、燃料電池を長時間運転した場合には、セル3とセパレータ4、冷却板5等のカーボン材料が接着して離れなくなり、無理やり剥がそうとすると、正常なセル3まで破損させてしまう場合がある。

【0011】例えば、冷却板5相互間に挟持された複数個のセル3のうち、例えば中間に位置するセル3にクロスリークが発生した場合、そのセル3だけを抜取るとは困難である。そこで、通常は、まず目標のブロックを

取出して、上のセル3から順番に一枚ずつ剥がしていくようにしている。

【0012】ところが、多くのセル3とセパレータ4、冷却板5等のカーボン材料が接着して離れなくなるため、やむを得ず正常なセル3まで破損させてしまうことになる。

【0013】

【発明が解決しようとする課題】以上のように、従来の燃料電池においては、長時間の運転により新しいセルと交換する場合に、セルとセパレータ、冷却板等のカーボン材料が接着して離れなくなり、無理やり剥がそうとすると、正常なセルまで破損させてしまうという問題があった。

【0014】本発明の目的は、長期間の運転によりセルとセパレータ間で接着しても容易に分離することができ、正常なセルを破損することなく目的の不良セルを容易に取り出して交換することが可能な燃料電池を提供することにある。

【0015】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するために本発明では、電解質を含浸したマトリックスを挟んで、流体燃料と流体酸化剤の流通溝が形成された一対のリブ電極を配置してなり、流通溝に流体燃料と流体酸化剤が平面方向に複数回流通している条件下で電気エネルギーを出力する単位セルを、セパレータを介して複数個積層し、さらに適宜冷却板を配置して一体に締付けた燃料電池積層体を備えて構成される燃料電池において、セパレータを、複数枚の炭素材で構成し、かつ当該各炭素材相互間を分離自在にしている。

【0016】ここで、特に上記セパレータを構成する複数枚の炭素材相互間を、非接着性シール材でシールすることが望ましい。また、上記非接着性シール材としては、フッ素樹脂系のシール材を用いることがより望ましい。

【0017】一方、上記セパレータは、厚さ0.3～0.5mmの炭素材を2～3枚積層して成ることが望ましい。また、上記セパレータは、3枚の炭素材を積層して構成し、当該上下の炭素材を対向するリブ付電極の流通溝とほぼ平行に反応部と端部とに分割し、かつ当該端部をフッ素樹脂フィルムで熱融着して成ることが望ましい。さらに、上記セパレータは、複数枚の炭素材相互間に、可撓性でかつ電気伝導性のシート状材料を挟持して成ることが望ましい。

【0018】

【作用】従って、本発明の燃料電池においては、セパレータが複数枚の炭素材で構成されていることにより、各炭素材相互間を容易に分離することが可能であるため、仮にセルと炭素材からなるセパレータとが接着しても、炭素材相互間で分離すれば、長時間運転した燃料電池の正常なセルを破損することなく、目的とする不良セルの

交換を容易に行なうことができる。

【0019】また、セパレータは、セル単位で分離可能であるため、次に再積層する場合には簡単に積層することができる。その上、セルとセパレータとが良く馴染んだ接触抵抗の小さい状態であるため、再発電しても安定した特性を得ることができる。

【0020】さらに、セパレータが複数枚の炭素材を積層して構成されていることにより、万一、長時間使用の間に1枚目の炭素材を貫通する貫通孔、あるいはヒビ割れが発生して、ガスが透過あるいは電解質（リン酸）が浸透しても、複数枚積層しているため、2枚目以後の炭素材で阻止することができ、流体燃料と流体酸化剤のクロスオーバーに至るのを防止することができる。

【0021】以上により、長時間運転した燃料電池の不良セルの交換を容易にするだけでなく、ガスの透過およびリン酸の浸透が少ない、信頼性の高い燃料電池が得られることになる。

【0022】

【実施例】まず、本発明の考え方について説明する。前述した燃料電池において、本出願人が、セルとセパレータ、冷却板等のカーボン材料の接着について鋭意調査した結果、燃料電池の運転時間の増大に伴って、接着するセルの割合が多くなること、また冷却板近傍のセルほど接着し易いこと、さらにセルの中でも蒸気圧の高い流体燃料、流体酸化剤のリターン側の位置が比較的多く接着していることが分かった。

【0023】一方、接着の原因について検討した結果、以下のような3つの理由により接着することが分かった。

(a) 図9は、セパレータとセルのカーボン繊維間の接着状態を示す拡大図である。図9中のaに示すように、セパレータ4のミクロ断面4'の突起部9と、カーボン繊維10の先端が締付けにより押付けられた場合、先端に応力が集中する。さらに、高温と長時間の締付けによって粘弾性接着を起こす。

【0024】(b) 図9中のbに示すように、セパレータ4とセル3のカーボン繊維10の隙間に、リン酸蒸気が凝縮したリン酸11が入ると、毛細管現象によって隙間が負圧となり、接着する。

【0025】(c) 図9中のcに示すように、セパレータ4とセル3のカーボン繊維10間に、接着性物質12が存在することによって接着する。この接着性物質12は、例えばマトリックスに使用しているSiC表面に存在する $\text{SiO}_2$ と、リン酸の反応生成物の一つであるリン酸珪素等である。長時間の運転により、液体リン酸珪素は、カーボン繊維10表面でガスと接触することによって濃縮され、粘性液体となって固体表面を接着する。

【0026】これらの原因が、単独あるいは複合して、セル3とセパレータ4、冷却板5等のカーボン材料を接着しているものと考えられる。そこで、本発明では、セ



パレータを、複数枚の炭素材で構成し、さらに各炭素材相互間を容易に分離可能に構成するものである。

【0027】ここで、複数枚の炭素材から構成されるセパレータは、厚さ0.3～0.5mmの炭素材を、2～3枚積層することにより構成することが望ましい。また、複数枚の炭素材から構成されるセパレータは、各炭素材相互間のガスリークを防止し、および炭素材相互間の分離を容易にするために、非接着性シール材を配置することが望ましい。

【0028】さらに、炭素材としては、一般的には、密度 $1.4\text{ g/cc}$ 以上、電気抵抗率 $5\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ 以下、熱伝導率 $4\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{k})$ 以上、ガス透過率 $10^{-4}\text{ cc}/\text{min}\cdot\text{cm}^2$ 以下というような、ガス不透過性、良導電性、良熱伝導性を併せて有する、できるだけ反りの少ないものを使用することが望ましい。

【0029】次に、炭素材の適性な積層枚数について詳細に検討した。図10は、セパレータ全体の厚さを1mmとした時の、セパレータの炭素材積層枚数とガス透過量との関係を示す特性図である。

【0030】すなわち、炭素材の積層枚数を、1枚(1mm×1)から2枚(0.5mm×2)にすることにより、ガス透過量は大きく減少する。さらに、炭素材の積層枚数を3枚(0.33mm×3)にした場合には、ガス透過量は減少し、さらに炭素材の積層枚数を4枚

(0.25mm×4)にした場合には、余り変化は見られなかった。

【0031】炭素材の積層枚数が多いほどガス透過量が減少することは明らかであるが、積層枚数を多くするには、薄い均一な厚みの炭素材が必要であり、それらを安く、寸法精度よく製造することは困難である。また、炭素材の積層枚数が多くなる程、接触抵抗が増加して電池特性に重要な電気伝導性が低下する。さらに、厚さ0.5mm以上の厚い炭素材を多数枚積層することも可能であり、ガス透過量は大きく減少するが、実際の燃料電池では、高さが高くなり重量も増加することから得策でない。

【0032】以上から、厚さ0.3～0.5mmの炭素材を2～3枚積層する場合が、燃料電池の積層高さおよび重量の増加が少なく、効率よくガス透過を阻止することができ、電気伝導性の低下を押さえることができることが分かった。

【0033】一方、炭素材相互間の分離を容易にするため、および複数枚の炭素材相互間のガスリークを防止するための非接着性シール材としては、フッ素樹脂系のシ

ール材を用いることが望ましい。

【0034】より、具体的には、PTFE樹脂製のシールテープや、多孔質PTFE樹脂シートを配置したり、PTFE樹脂製グリースを塗布したりすることにより達成できる。また、フッ素ゴムシートも使用可能であるが、温度等の条件によっては、炭素材相互間を粘着してしまう場合がある。

【0035】以上から、フッ素樹脂系のシール材を用いることにより、非接着性シール材であるため、炭素材相互間の分離を容易にすることができる。さらに、炭素材相互間のガスシール機能の向上、および撥水性により、電解質(リン酸)の浸透も防止することができる。

【0036】以下、上記のような考え方に基づく本発明の実施例について、図面を参照して詳細に説明する。

(第1の実施例)図1は、本実施例によるセパレータを有する燃料電池の要部構成例を示す分解斜視図である。

【0037】図1において、各セル3間には、ガスを分離するために本実施例のセパレータ13を配置している。また、このセパレータ13は、厚さ0.5mm、密度 $1.7\text{ g/cc}$ 、電気抵抗率 $1.4\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ 、熱伝導率 $7\text{ W}/(\text{m}\cdot\text{k})$ 、ガス透過率 $10^{-5}\text{ cc}/\text{min}\cdot\text{cm}^2$ 、気孔率7%の炭素材14を、2枚積層して構成している。

【0038】さらに、各炭素材14相互間には、炭素材14相互間の分離を容易にし、さらに炭素材14相互間のガスリークを防止するために、図2に図1のA-A'部分断面図を示すように、非接着性シール材15として、例えばPTFE樹脂製のシールテープ(幅20mm、厚さ0.15mm)を配置している。

【0039】また、非接着性シール材15は、図3(a)(b)に平面図を示すように、対向する2辺、あるいは周囲4辺に配置することができる。すなわち、この非接着性シール材15は、シールが確実である場合には、2辺でもその機能を果たすが、安全性を考慮すると、周囲4辺に配置する方が望ましい。

【0040】次に、本実施例のセパレータ13を用いてセル3を積層し、所定の運転条件で燃料電池を約1000時間運転して、前述した従来のセパレータ(厚さ1mm、その他、炭素材の物性は本実施例のセパレータと同様)4を用いて積層した燃料電池と比較を行なった。燃料電池の運転後、解体を行ない、正常に分離できたセルの割合を調べた。

【0041】

【表1】

表 1 正常に分離できた単位セルの割合

	正常に分離	破 損	備 考
本発明のセパレータ	100%	0%	容易に分離できる
従来のセパレータ	20%	80%	慎重さと分離に長時間要

【0042】その結果は、表1に示すように、本実施例のセパレータ13を使用した燃料電池においては、例えばセル3とセパレータ13が接着しても、複数枚の炭素材14からなるセパレータ13であり、さらに炭素材14相互間には、非接着性シール材15を配置しているため、容易に分離が可能であり、100%破損することなく、各セル3を分離することができた。

【0043】一方、従来のセパレータ4を使用した燃料電池では、慎重にセル3の分離を試みたが、全体の20%しか正常に分離することができなかった。そして、残り80%は、破損の程度の差はあるが、使用不可能なセルであった。この時のセル3とセパレータ4との接着状態を詳細に観察すると、全体が接着されたセル3はなく、反応部分に局部的に強く接着した場所があり、僅かに破損した状態のセル3が比較的多かった。

【0044】このように、2枚の炭素材14を積層してなる本実施例のセパレータ13は、炭素材14相互間で容易に分離することができるため、目的の不良セル3を他の正常なセル3を破損することなく、容易に取出すことができる。

【0045】また、ガス透過、リン酸浸透を2枚の炭素材14で阻止することができ、クロスオーバーがないため、長期間安定した特性を維持することができる。上述したように、本実施例による燃料電池のセパレータ13は、2枚の炭素材14を積層して構成しているため、長期間の運転によりセル3とセパレータ13間が接着しても、炭素材14相互間で容易に分離することができ、正常なセル3を破損することなく、目的の不良なセル3を容易に取り出して交換することが可能となる。

【0046】また、セパレータ13は、セル3単位で分離可能であるため、次に再積層する場合には簡単に積層することが可能となる。その上、セル3とセパレータ13とが良く馴染んだ接触抵抗の小さい状態であるため、再発電しても安定した特性を得ることが可能となる。

【0047】さらに、セパレータ13を2枚の炭素材14を積層して構成しているため、万一、長時間使用の間に1枚目の炭素材14を貫通する貫通孔、あるいはヒビ割れが発生して、ガスが透過あるいは電解質（リン酸）が浸透しても、2枚目以後の炭素材で阻止することができ、流体燃料と流体酸化剤のクロスオーバーに至るのを

防止することが可能となる。

【0048】以上により、長時間運転した燃料電池の不良セル3の交換を容易にするだけでなく、ガスの透過およびリン酸の浸透が少ない、信頼性の高い燃料電池を得ることができる。

【0049】（第2の実施例）本実施例は、前述した約10000時間運転後の、セル3とセパレータ13との接着が、反応部分に局部的に強く接着する場所があることに着目して、反応部分の炭素材14だけを容易に分離できるようにしたものである。

【0050】図4は、本実施例によるセパレータを有する燃料電池の要部構成例を示す分解斜視図であり、図1乃至図3と同一要素には同一符号を付して示している。図4において、各セル3間には、ガスを分離するために本実施例のセパレータ13を配置している。

【0051】また、このセパレータ13は、厚さ0.3mm、密度1.7g/cc、電気抵抗率1.4mΩ・cm、熱伝導率7W/(m・K)、ガス透過率10<sup>-5</sup>cc/min・cm<sup>2</sup>、気孔率7%の炭素材14を、3枚積層して構成している。

【0052】さらに、上下の炭素材14は、図5に図4のA-A'部分断面図を示すように、それぞれ対向するリブ付き電極2の溝とほぼ平行に、反応部炭素材14aと端部炭素材14bとに分割し、また上下の炭素材14の端部炭素材14bは、中央の炭素材14とフッ素樹脂フィルム16で熱融着により融着している。

【0053】ここで、フッ素樹脂フィルム16としては、例えばPFA樹脂フィルムを用いて熱融着を行なう。具体的には、幅20mm、厚さ0.5mmのPFA樹脂フィルムを、中央の炭素材14と上下の炭素材14の端部14bとの間に置き、摂氏310～380度の温度に加熱して、プレス圧力1Kg/cm<sup>2</sup>以上の圧力で、約1～30分間かけて熱融着する。

【0054】なお、熱融着には、PFA樹脂フィルム他に、PTFE樹脂フィルム、FEP樹脂フィルム等を用いることができる。さらに、反応部炭素材14aは、熱融着された端部炭素材14b間に設置しており、中央の炭素材14との間には、分離を容易にし、かつリン酸の侵入を防止するために、撥水性を持つ非接着性シール材15を配置している。具体的には、PTFE樹脂製の

シールテープ（幅20mm、厚さ0.15mm）を配置しており、非接着性であるので容易に取外しができる。

【0055】以上のように構成した本実施例のセパレータ13を使用した燃料電池においては、長時間運転により、セル3とセパレータ13とが接着しても、反応部分に局部的に強く接着する場所が比較的多いことから、上下の炭素材14の反応部炭素材14aはリブ付き電極2と接着するが、残りの端部炭素材14bとはほとんど接着しない。従って、接着した上下の反応部炭素材14aと、残りの中央の炭素材14とフッ素樹脂フィルム16で熱融着された端部炭素材14bとは容易に分離できる。

【0056】また、次に使用する時には、上下の反応部炭素材14aだけを新たに準備し、残りの中央の炭素材14とフッ素樹脂フィルム16で熱融着された端部炭素材14bを再使用することができる。

【0057】さらに、本実施例の上下の炭素材14の端部炭素材14bは、PFA樹脂フィルムで熱融着されているため、炭素材14相互間のシール性は特に優れている。次に、本実施例のセパレータ13を用いてセル3を積層し、所定の運転条件で燃料電池を約10000時間運転して、前述した従来のセパレータ（厚さ1mm、その他、炭素材の物性は本実施例のセパレータと同様）4を用いて積層した燃料電池と比較を行なった。

【0058】燃料電池の運転後、解体を行ない、正常に分離できたセル3の割合を調べた。その結果は、全体の100%、正常なセル3を破損することなく分離することができた。

【0059】（第3の実施例）本実施例は、複数枚の炭素材からなるセパレータの炭素材相互間に、可撓性でかつ電気伝導性のシート状材料を挟持させて、炭素材相互間の分離を容易にすると共に、セパレータの電気伝導性を向上させるようにしたものである。

【0060】図6は、本実施例によるセパレータを有する燃料電池の要部構成例を示す分解斜視図であり、図1乃至図5と同一要素には同一符号を付して示している。図6において、各セル3間には、ガスを分離するために本実施例のセパレータ13を配置している。

【0061】また、このセパレータ13は、図7に図6のA-A'部分断面図を示すように、上下の炭素材14と炭素材14間に挟持された可撓性でかつ電気伝導性のシート状材料17から構成している。

【0062】ここで、炭素材14としては、厚さ0.3mm、密度1.7g/cc、電気抵抗率1.4mΩ・cm、熱伝導率7W/(m・k)、ガス透過率 $10^{-5}$ cc/min・cm<sup>2</sup>、気孔率7%のものを用いる。

【0063】また、可撓性でかつ電気伝導性のシート状材料17としては、例えば膨張黒鉛シート、耐熱導電性フィルム等を用いて、非接着性により炭素材14相互間の分離を容易にすると共に、可撓性により炭素材14相

互間の隙間をなくし、炭素材14相互間をより密着させて、電気伝導性、熱伝導性を向上させている。

【0064】ここで、シート状材料17としては、厚さ0.38mm、密度1.0g/cc、電気抵抗率100mΩ・cm、熱伝導率3W/(m・k)の膨張黒鉛シートを用いる。

【0065】次に、本実施例のセパレータ13を用いてセル3を積層して所定の圧力で締付け、所定の運転条件で燃料電池を約10000時間運転して、前述した従来のセパレータ（厚さ1mm、その他、炭素材の物性は本実施例のセパレータと同様）4を用いて積層した燃料電池と比較を行なった。

【0066】燃料電池の運転後、解体を行ない、正常に分離できたセル3の割合を調べた。その結果は、全体の100%、正常なセル3を破損することなく分離することができた。

【0067】また、電気抵抗率、熱伝導率を、炭素材14相互間のシート状材料17挟持の有無で比較調査した。その結果、シート状材料17を挟持した本実施例のセパレータ13は、シート状材料17挟持なしのセパレータ4に比較して、電気抵抗率、熱伝導率共に、約10%向上することが明らかになった。これは、可撓性でかつ電気伝導性のシート状材料17を挟持させることにより、炭素材14相互間の隙間をなくして、炭素材14相互間をより一層密着させたことによる効果であると考えられる。

【0068】尚、本発明は上記各実施例に限定されるものではなく、次のようにしても同様に実施することができるものである。上記第1の実施例において、セパレータ13は、2枚の炭素材で構成されているが、これに限らず、3枚（厚さ0.33mm）の炭素材で構成しても、前述の場合と同様の作用効果が得られることは言うまでもない。

【0069】

【発明の効果】以上説明したように本発明によれば、電解質を含浸したマトリックスを挟んで、流体燃料と流体酸化剤の流通溝が形成された一対のリブ電極を配置してなり、流通溝に流体燃料と流体酸化剤が平面方向に複数回流通している条件下で電気エネルギーを出力する単位セルを、セパレータを介して複数個積層し、さらに適宜冷却板を配置して一体に締付けた燃料電池積層体を備えて構成される燃料電池において、セパレータを、複数枚の炭素材で構成し、かつ当該各炭素材相互間を分離自在にするようにしたので、長期間の運転によりセルとセパレータ間で接着しても容易に分離することができ、正常なセルを破損することなく目的の不良セルを容易に取り出して交換することが可能な燃料電池が提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明による燃料電池の第1の実施例を示す分解斜視図。

【図2】同第1の実施例の燃料電池におけるセパレータの構成例を示す断面図。

【図3】同第1の実施例の燃料電池におけるセパレータの炭素材間の非接着性シール材の配置例を示す平面図。

【図4】本発明による燃料電池の第2の実施例を示す分解斜視図。

【図5】同第2の実施例の燃料電池におけるセパレータの構成例を示す断面図。

【図6】本発明による燃料電池の第3の実施例を示す分解斜視図。

【図7】同第3の実施例の燃料電池におけるセパレータの構成例を示す断面図。

【図8】従来の燃料電池の構成例を示す分解斜視図。

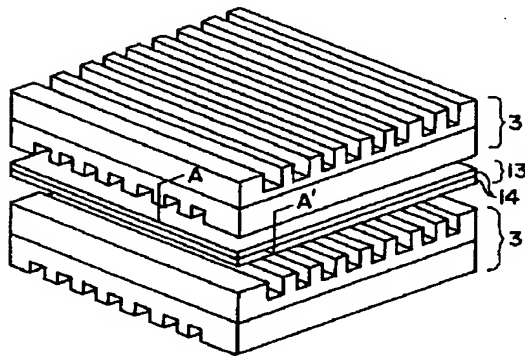
【図9】燃料電池におけるリブ付電極のセルとセパレータとの間の接着状態を示す拡大図。

【図10】燃料電池におけるセパレータ全体の厚さを1mmとした時の、セパレータの炭素材積層枚数とガス透過量との関係を示す特性図。

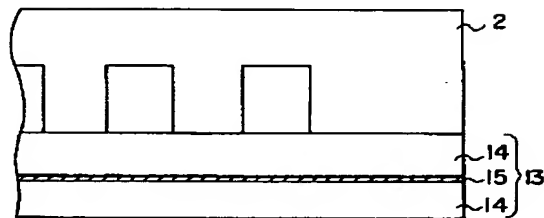
【符号の説明】

- 1…マトリックス、
- 2…リブ付電極、
- 3…セル、
- 3a…冷却板近傍のセル、
- 3b…中央部のセル、
- 4…セパレータ、
- 5…冷却板、
- 6…仕切り部、
- 7a…流体燃料入口側、
- 7b…流体燃料リターン側、
- 8a…流体酸化剤入口側、
- 8b…流体酸化剤リターン側、
- 13…セパレータ、
- 14…炭素材、
- 14a…反応部炭素材、
- 14b…端部炭素材、
- 15…非接着性シール材、
- 16…フッ素樹脂フィルム、
- 17…シート状材料。

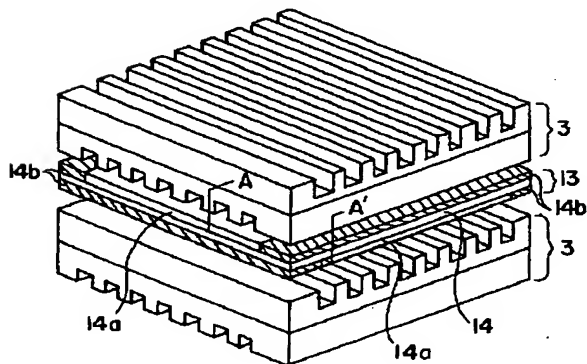
【図1】



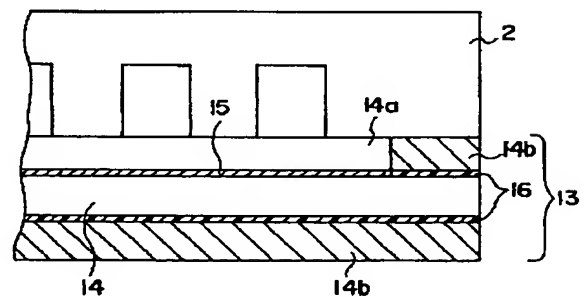
【図2】



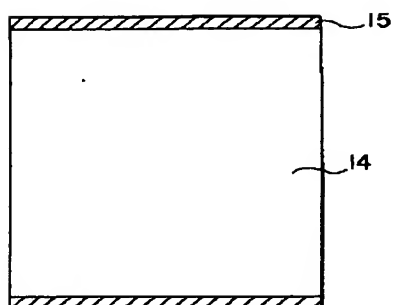
【図4】



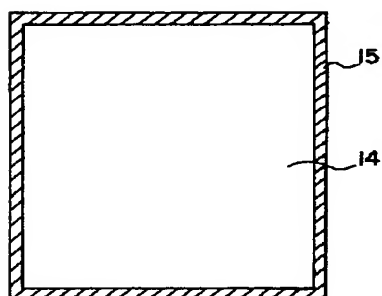
【図5】



【図3】

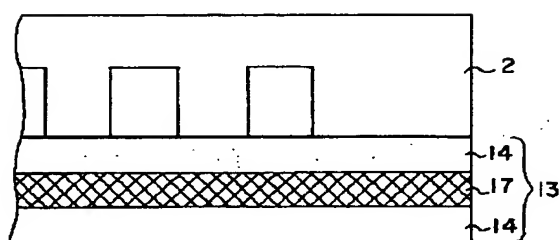


(a)

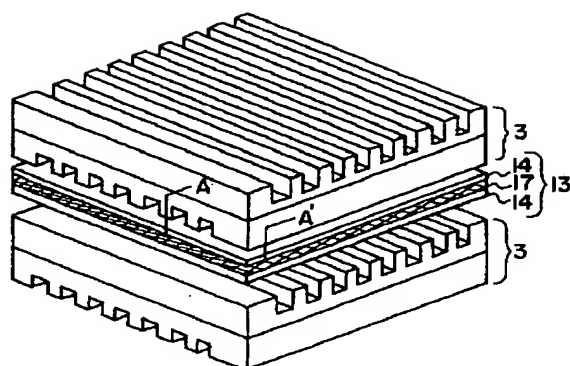


(b)

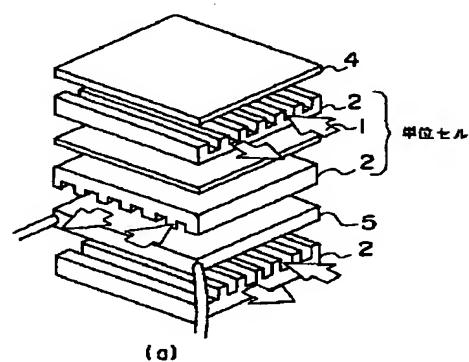
【図7】



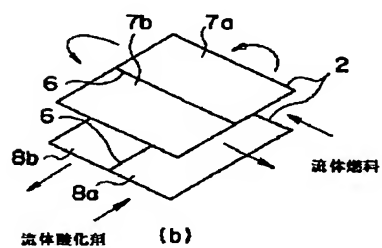
【図6】



【図8】

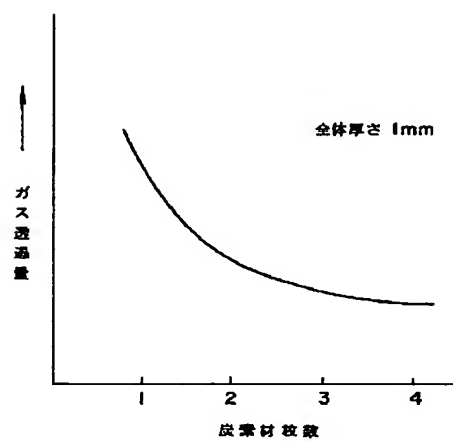


(a)



(b)

【図10】



【図9】

